

12
13



(2,000円)



① 日本国特許庁

公開特許公報

① 特開昭 51-36300

④ 公開日 昭51.(1976) 3.27

② 特願昭 49-109115

② 出願日 昭49.(1974) 9.21

審査請求 未請求 (全3頁)

庁内整理番号

6714 45

6685 45

② 日本分類

26(5)K211.1

26(5)M0

⑤ Int. Cl²

C08G 59/42H

C08G 83/00

特許願 (/)
昭和 49 年 9 月 21 日

特許庁長官 殿

1 発明の名称 耐熱性エポキシ樹脂の製法

2 発明者 住所 大阪府門真市大字門真1048番地
松下電工株式会社内

氏名 松村 昌弘
(ほか1名)

3 特許出願人 住所 大阪府門真市大字門真1048番地
名称 (583) 松下電工株式会社
代表者 丹羽 正治

4 代理人 住所 大阪府門真市大字門真1048番地
氏名 (6201) 弁理士 竹元 敏丸
(ほか2名)

5 添付書類の目録
(1) 明細書 1通
(2) 図面 1通
(3) 委任状 1通
(4) 願書副本 1通

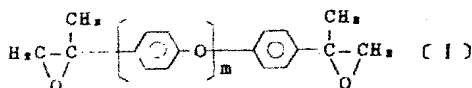
明 細 書

1. 発明の名称

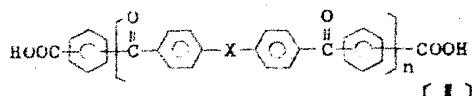
耐熱性エポキシ樹脂の製法

2. 特許請求の範囲

下記一般式〔I〕で表わされるエポキシ化合物と、下記一般式〔II〕で表わされるケトンジカルボン酸を反応させることを特徴とする耐熱性エポキシ樹脂の製法。



(ここでmは1, 2, 3)



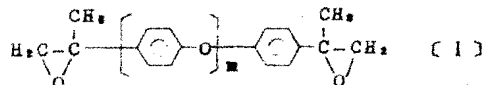
(ここでXはCH₂, S, nは正の整数)

8. 発明の詳細な説明

本発明は耐熱性の改良されたエポキシ樹脂の製法に関するものである。

従来、エポキシ樹脂の耐熱性を向上させる目的で種々の試みがなされているが、代表的な試みとしては、ビス〔4-(1-メチル-1,2-エポキシエチル)フェニル〕エーテル等とビロメリット酸またはトリメリット酸などの芳香族ポリカルボン酸からエポキシ樹脂を得る方法が知られている。本発明はこのエポキシ樹脂よりもさらに耐熱性の改良された新規なエポキシ樹脂の製法を提供するものである。

すなわち、本発明は下記一般式〔I〕で表わされるエポキシ化合物と、下記一般式〔II〕で表わされるケトンジカルボン酸を反応させることを特徴とする。



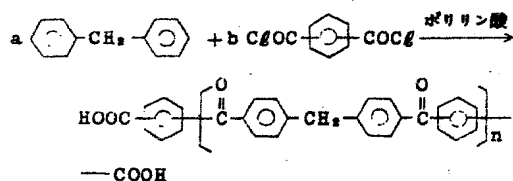
(ここでmは1, 2, 3)



(ここでXはCH₂, S, nは正の整数)

上記エポキシ化合物としてはビス〔4-(1-メチル-1,2-エポキシエチル)フェニル〕エーテル、ハイドロキノビス〔4-(1-メチル-1,2-エポキシエチル)フェニル〕エーテル、4,4'-ジエポキシジフェニルエーテル-4,4'-ビス〔4-(1-メチル-1,2-エポキシエチル)フェニル〕エーテルなどがある。これらエポキシ化合物の合成法はJournal of Applied Polymer Science 第11巻(1967年)、2028頁~2036頁に示されている。

またケトンジカルボン酸については、たとえXがCH₂のものについて述べると、次の反応式に従って合成される。



すなわちポリリン酸を溶媒として、ジフェニルメタンとイソまたは(および)テレフタル酸クロ

リドをb/a > 1.1の割合で反応させるものである。

以上のエポキシ化合物とケトンジカルボン酸を配合して、反応させることにより極めて高い耐熱性を有する硬化物を得ることができる。

エポキシ化合物とケトンジカルボン酸の配合物は、両者を反応させて硬化させる前は熱時、加圧により流動性を示し、成形性を有することから適当な充填材、補強材を混合するか、または混合せずに成形材料として用いることができる。またガラス布などを基材として用いてプリプレグを得て常法により積層板を得ることもできるし、配合物を溶剤に溶かして耐熱、耐蝕塗料とすることもできる。

なお、基材としては常法によるエポキシ樹脂-ガラスマツトプリプレグを用い、表層用としてさきの配合物を用いたプリプレグを用いて積層成形し安価で耐熱性等のよい複合積層板を得ることもできるし、さらに成形に際して銅箔などの金属箔を一体化させ、プリント配線基板とすることもできる。

以下実施例に基づき説明する。

実施例

(ケトンジカルボン酸の合成)

11.5gのポリリン酸200g中にイソフタル酸ジクロリド20.8gとジフェニルメタン11.88gとを投入し攪拌下、発泡に注意しながら加熱して200℃まで温度上昇させた後2.6時間反応させた。この反応混合物を水1.5kg中に投入し、ろ過水洗を3~4回くりかえし次いで熱湯で10回程度洗浄した後乾燥した。得られたものはジメチルアセトアミドに可溶なる粉体で、このものの赤外線吸収スペクトル分析の結果1640~1650 cm⁻¹にケトン型カルボニル、1700~1690 cm⁻¹に芳香族カルボン酸の吸収が認められた。また末端カルボキシル基の定量より4.60(COOH当量)の値を得た。

(エポキシ樹脂組成物及び硬化物の製造)

上記の合成によつて得られたケトンジカルボン酸4.6gとビス〔4-(1-メチル-1,2-エポキシエチル)フェニル〕エーテル1.4gを蒸留し

たジメチルアセトアミドの最少量に混合溶解して耐熱性エポキシ樹脂組成物を得た。

この組成物を150℃4時間、160℃5時間処理したところエポキシ樹脂の暗褐色の硬化物が得られた。この硬化物を細粉砕してジメチルアセトアミド及び濃硫酸に投入したところいずれも不溶で上記熱処理によつて反応がおこり変化したものと認められた。この硬化物は、示差熱天秤分析の結果220℃まで重量変化がなくすぐれた耐熱性を有していることを確認した。

特許出願人

松下電工株式会社

代理人 井理士 竹元 敏 九

(ほか2名)

6 前記以外の発明者、特許出願人または代理人

(1) 発 明 者

住 所

大阪府門真市大字門真1048番地
松下電工株式会社内

氏 名

橋 田 義 弘

(2) 特 許 出 願 人

(3) 代 理 人

住 所

大阪府門真市大字門真1048番地
松下電工株式会社特許課内

氏 名

(7338) 弁護士 佐 藤 成 示

住 所

大阪府門真市大字門真1048番地
松下電工株式会社特許課内

氏 名

(7587) 弁護士 川 瀬 幹 夫